空气荧光法远程测量α表面污染装置的研究进展与展望

司书尧[1,2,4]，常琪林[1#]，韩雪岩[3]，陈俊良[1,2]，杨惠敏[1]，方开洪[3]，钟轶强[1,2]，刘彩兵[1,2,4]，李连顺[1,2,4]，杨廷贵[1,2]，王健[1,2#]

1. 中核四0四有限公司 科学技术研究院，甘肃 嘉峪关 735100；
2. 甘肃省核燃料循环技术重点实验室，甘肃 嘉峪关 735100；
3. 兰州大学核科学与技术学院，甘肃 兰州 730000；
4. 中核四0四成都核技术工程设计研究院有限公司，四川 成都 610000。

摘要：在核工业领域，许多场所、工厂等存在α表面污染情况，在出现应急工况的时候，一般需要先对异常区域进行远程探测，再结合测量结果科学地制定解决方案。针对此现状，国际上提出了基于空气荧光的α粒子测量方法，其原理是空气中的氮气在α辐射作用下通过激发退激过程会发射特定波长的紫外荧光，允许被紫外相机远程探测，从而可以间接检测α污染。在国内对α污染远程探测技术的研究报道较少，中核四0四联合兰州大学已经率先开展了此项研究。文章主要综述了国际上基于氮气荧光的α污染远程探测技术的发展状况，简述了当前团队最新的研究工作，以期为国内开展α污染远程探测研究提供参考。

关键词：空气荧光；α表面污染；远程探测；核探测

中图分类号：TN16 **文献标识码：**

涉核领域中，核辐射检测对于核设施正常运行、退役、保障核安全等具有重要意义。就α污染检测而言，传统的探测器一般为基于 ZnS（Ag）闪烁体的常规探测器，闪烁体吸收α粒子产生闪烁光并被探测器接收，其探测效率接近 100%[1,2]。然而，α射线在空气中的射程只有几厘米，闪烁体需要与α粒子直接相互作用才能达到检测目的。因此，基于闪烁体的α污染探测器必须在α射线射程范围内进行近距离探测。基于闪烁体的常规α探测技术在医疗领域得到了良好应用[3]，但在核工业现场，会面临多种多样无法近距离测量的情况。α粒子的

收稿日期：yyyy-mm-dd; **修改日期：**yyyy-mm-dd

基金项目：中核集团“青年英才”项目资助；

作者简介：司书尧（1991—），男（汉族），籍贯（山东淄博），高级工程师，博士，离子束技术应用；E-mail：ssy@whu.edu.cn

通信作者：王健（1968—），E-mail：wjzh404@163.com；常琪林（1996—），E-mail：xuanyuanl1317@163.com

穿透能力相较其他几种电离辐射最弱（可被一张纸或皮肤阻挡），但却具有最强的固体电离能力，摄入α粒子对机体造成的损伤远大于其他类型辐射，针对α辐射的安全防护措施不可或缺[4, 5]。对大面积区域进行检测时，必须耗费人力和大量时间来近距离扫描测量，使得对辐射安全的保障也会变得更加困难。此外，在操作过程中还要留意保护探测器的窗口[6]。鉴于以上常规α探测器在核工业领域面临的问题，迫切需要开发能够远程探测α污染的技术。

本综述首先概述了α污染远程成像系统的物理原理和技术方法，分析了国际上公开报道的基于氮气荧光的远程α污染成像系统的设计和性能评价结果，简述了中核四 0 四联合兰州大学团队的最新研究成果，最后总结了该探测技术的研究现状，展望了未来需要进行的研究工作，为继续开展α污染远程探测研究提供参考。

1 α污染成像原理

α射线是一种带电粒子流，可导致空气中粒子电离并激发氮分子，从而在紫外线范围内以光子的形式释放能量[6, 7]。这些光子的平均自由程比α粒子大得多，因此可利用α粒子在空气中诱导的辐射发光现象来实现远程探测。对空气荧光的研究可以追溯至 1903 年哈金斯夫妇的工作[8]，但直到 2001 年该效应才被逐渐尝试应用于实现α放射性的远程探测[1, 9-13]。乌克兰科学家 Baschenko 在 2004 年对该效应进行了光谱研究，得到了标准条件下大气中α辐射发光光谱图，如图 1 所示，95%以上的α诱导辐射发光强度集中在 300～400 nm 的波长范围内，即近紫外区（UVA 和 UVB），主要发射体为氮分子[10]。

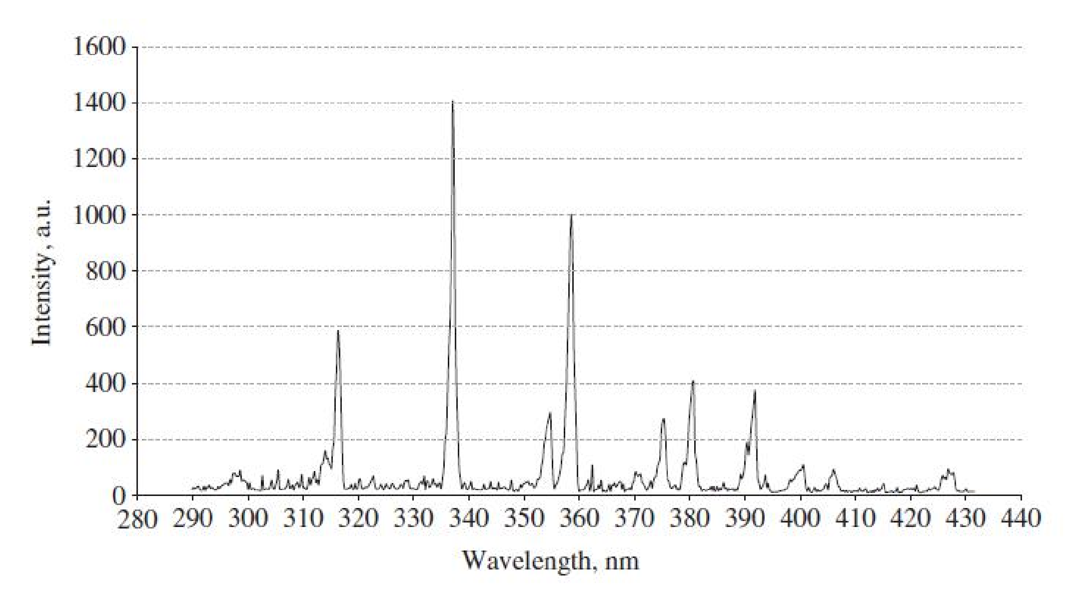


图 1 标准条件下大气中α辐射发光光谱图[10]

通过空气辐射发光效应探测辐射源的技术适用于所有电离辐射的光学测量，但尤其适用

于α辐射，这是由于α射线的近程辐射和高电离能力，辐射的能量将密集地沉积在距离辐射源几厘米的范围内，更容易定位发射源[6, 11]。Baschenko 还研究发现，α、β和γ诱导的辐射发光强度之比为 1：10^{-8}：10^{-10}，因此，在其他种类辐射存在下，依然可以检测到强度明显更大的α辐射光，允许将α辐射区分出来[10]。

实际上，95%的α诱导辐射荧光所处的波长范围（300~400 nm）与太阳光的光谱以及典型的荧光灯重叠，这意味着太阳光或室内照明光会对检测α粒子诱导的辐射发光产生严重的背景干扰[14]。太阳辐射强度在该波段下达到（2-8）× 10^{-2} W cm^{-2} nm^{-1}，而活度为 37 MBq 的辐射源诱导的辐射发光峰值强度在 10-10~10^{-7} W cm^{-2} nm^{-1} 之间，即使在夜间，环境光也会大于辐射发光信号[4, 10]。为尽可能降低干扰，研究报道的α污染成像装置多在黑暗环境或特殊照明条件下进行试验，以减轻消除背景光带来的压力[1, 6, 10, 11, 14]。背景干扰的另一对策则着眼于紫外线 C 区（UVC）的（180 ~ 280 nm）的辐射，即所谓的“太阳盲区（Solar blind region）”[15]。该波段下，虽然辐射荧光的强度较低，但是太阳光产生的辐射会被大气层中的臭氧吸收难以到达地表，而且，视窗玻璃也可以有效抑制普通光源的深紫外线辐射，因此背景干扰光水平极低[14]。关于针对“太阳盲区”波段的研究，即正常照明条件下的远程α污染成像系统，也有所进展[16, 17]。

2 α污染远程成像系统的技术选择

α污染远程成像装置一般由光学系统和光电信号转换系统组成，获取数据后经计算机进行数据集成和处理后得到污染源图像，在此基础之上，可增加辅助装置以获取更好的成像效果，如图 2 所示。

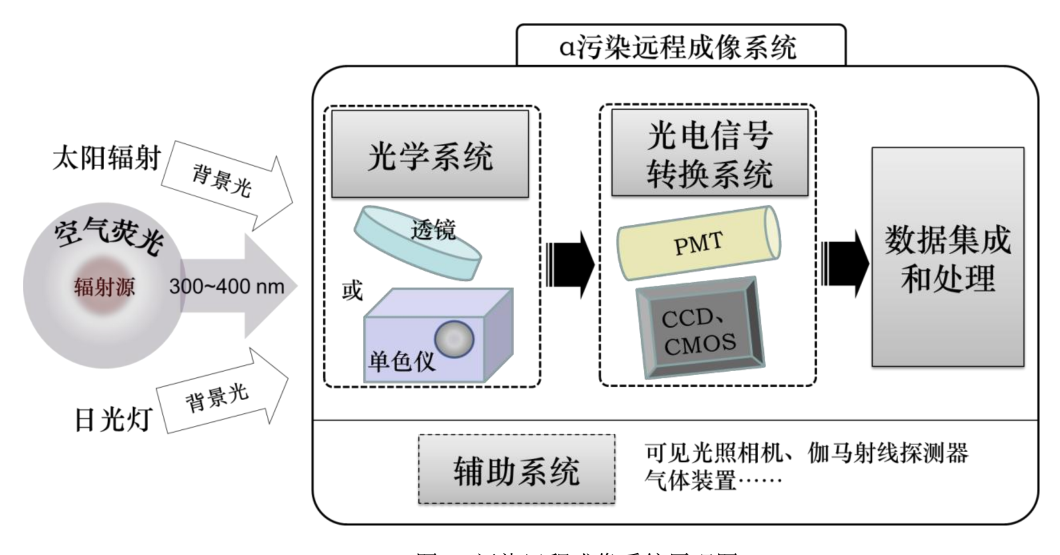


图 2 α污染远程成像系统原理图

下面将具体概述α污染远程成像系统各组成部分的技术选择。

2.1 光学系统

光学系统能够有效收集辐射产生的荧光并将其传输给后续光学成像设备。据文献报道，多数情况下会选择熔融二氧化硅或熔融石英（可投射紫外光）材质的物镜、聚焦透镜以及滤波片等玻璃光学器件，组成光学系统[1, 6, 12, 18]。如 Inrig 等人设计的探测器的光学系统如图 3 所示，由六个球面透镜和一个非球面透镜（相位掩模）组成，所有镜头都是由熔融二氧化硅制成，且镜头表面涂有防反射涂层以减少光损失，该设计为提高光通量而牺牲了部分视野和分辨率（光圈系数仅为 1.23）[6]。Johan Sand 等人设计的光学系统将多个滤波片连续堆叠，在尽可能保持紫外光高通量的同时充分衰减可见光，以实现在正常照明条件下的探测工作[14]。

实际上，基于氮气荧光的α污染探测研究的显著困难之一在于背景光的干扰（自然光或照明设备），背景光的强度通常比α粒子诱导的氮气荧光信号大得多[17]。虽然在黑暗或特殊照明条件下操作可在一定程度上缓解背景光的干扰，但在实际应用中不可能总是指定探测现场的照明条件，因此要在光学系统中通过设计优化滤波设备来降低背景光干扰。

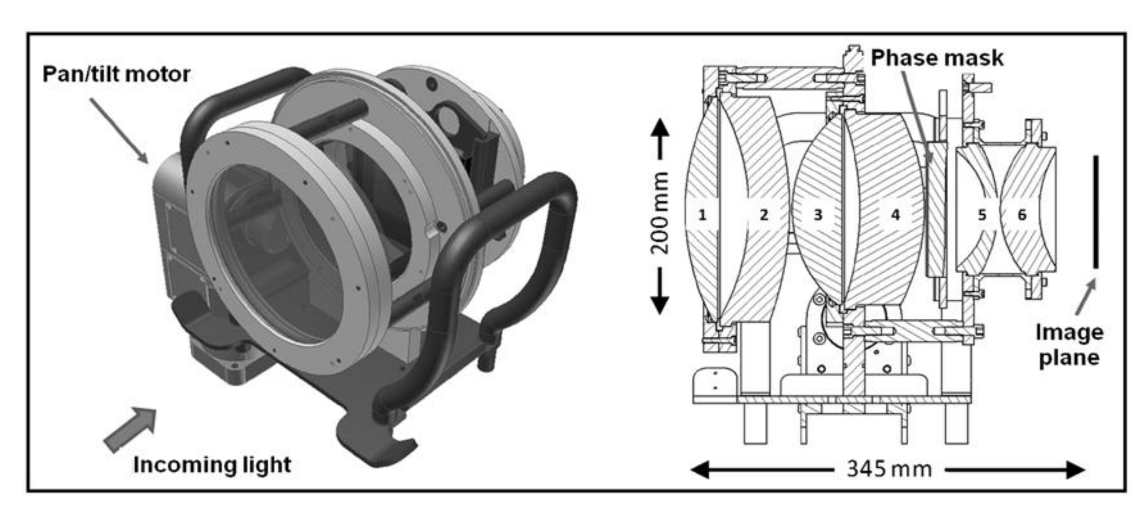


图 3 空气荧光成像仪的光学设计[6]

2.2 光电信号转换系统

光电探测器是一种能够将光信号转换为电信号的器件，目前为止，文献报道中的α污染成像系统选用的光电探测器均为 PMT 或 CCD。虽然 Shaw 等人在 2019 年报道了一种盖革模式雪崩光电二极管（GM-APD），相较于 CCD 和 PMT，GM-APD 检测深紫外光时具有更好的量子效率，但至今未见将 GM-APD 应用于远程α探测的相关报道[19]。

早在 2004 年，乌克兰科学家 Baschenko 在标准条件下，开展了大气中α辐射发光光谱图的测量实验，搭建的实验室模型就选择了 PMT 作为光电探测器[10]。PMT 具有较好的单光子

灵敏度和低暗计数率，虽然不具备成像功能，但其成本较低[20]。日本的 Hamamatsu 公司还推出了一种铯-碲光电阴极的 PMT（H11870–09, Hamamatsu），这种 PMT 对紫外光的响应范围为 160 ~ 320 nm，因而适用于远紫外光探测，也被称为太阳盲（SB）探测器[14]。光学系统通过滤波来降低背景光干扰，但是滤波的过程也不可避免地衰减了本就微弱的荧光信号，因此针对背景光干扰提出了另一解决策略，即选用对可见光不敏感但对太阳盲区响应敏感的光电探测器。Johan Sand 等人在滤波的基础上，采用了这种对远紫外光敏感的铯-碲光电阴极 PMT，成功研制出可在日光条件下工作的α污染探测器，这种配置以适中的成本实现了高检测效率[14]。另外，还有一种名为 UVTron（R9533, Hamamatsu）的探测器也被大量文献报道，UVTron 探测器具有更窄的远紫外光响应范围（180 ~ 260 nm），与“太阳盲区”更加吻合[17]。Crompton 等人研究报道的α污染成像系统就采用了这种 UVTron 探测器，能够在正常照明条件下工作[17]。

CCD 探测器相较于 PMT 不需要逐点扫描，而且可以成像，在科研试验相机中应用广泛。以 Lamadie 等为代表的研究者们最先开始了基于空气荧光技术的α污染远程成像装置的研制，也是选择了 CCD 相机检测辐射荧光信号，而且在使用过程中使用液氮冷却降噪，以延长曝光时间获取更准确的图像[12]。随着科学家们对 CCD 探测器研究的不断深入，先后发展出像增强型 CCD（ICCD）和电子倍增 CCD（EMCCD），可实现极弱光信号的成像。Johan Sand 等人在 2015 年对比了分别基于 ICCD 和 EMCCD 的两款α污染探测器的实际检测性能，两者都取得较好结果[11]。然而，Lamadie 和 Johan Sand 等人的研究都是在黑暗条件下进行的试验，且 CCD 相机的使用离不开诸如液氮冷却降噪的特殊处理。要在日光条件下实现基于 CCD 相机的α污染探测器成像，需要更好的滤波。Ivanov 等人选用了一种现成的名为 DayCor SuperB 的紫外相机用于日光条件下远程α污染成像研究并取得成功，据文献可知 DayCor SuperB 相机原本用于显示高压设备的电晕和电弧来进行故障诊断，它将 ICCD 相机与光学滤波结合，只检测波长小于 290 nm 的紫外线（UVC）[16]。不过，Lamadie 和 Sand 等人都认为，应该关注光学滤波和光电探测材料的改进，开发一些更适合紫外线探测的新材料，如氮化镓（GaN）等，在商业应用上也许可以取代 CCD 器件[11, 12]，而且 ICCD 和 EMCCD 作为可应用于军事的科学元件，都受到进出口管制。

2.3 辅助系统

在光学系统和光电信号转换系统的基础上，可通过一些辅助手段以获得更好的成像效果，或通过这些辅助设备增强α污染成像系统的功能。例如，大气环境中氮的荧光辐射可被氧气

和水蒸气有效猝灭，若能引入纯氮或惰性气体环境，荧光产率则会显著提高[7, 21]，因此 Crompton 等人用一种气体装置输送惰性气体流经辐射源，研究 Ar、Xe、Ne、N_2和 Kr 等气体对荧光信号的增强效果，该方法可用于探测较弱的α源[15]。Johan Sand 及其团队研发了一种 UV-γ符合成像系统（见图 4），这种系统在α污染探测器的基础上还加装了γ探测器和一个门控装置，仅记录和辐射荧光同时探测到的γ光子，以此实现在高放射线背景中对α辐射的识别[22]。在 Kume 等人的研究中，为了移除γ射线背景也在光电探测器外配置一个特殊结构的铅盒，通过模拟γ射线的衰减情况可进一步优化铅盒结构以获得更好的屏蔽效果[1]。

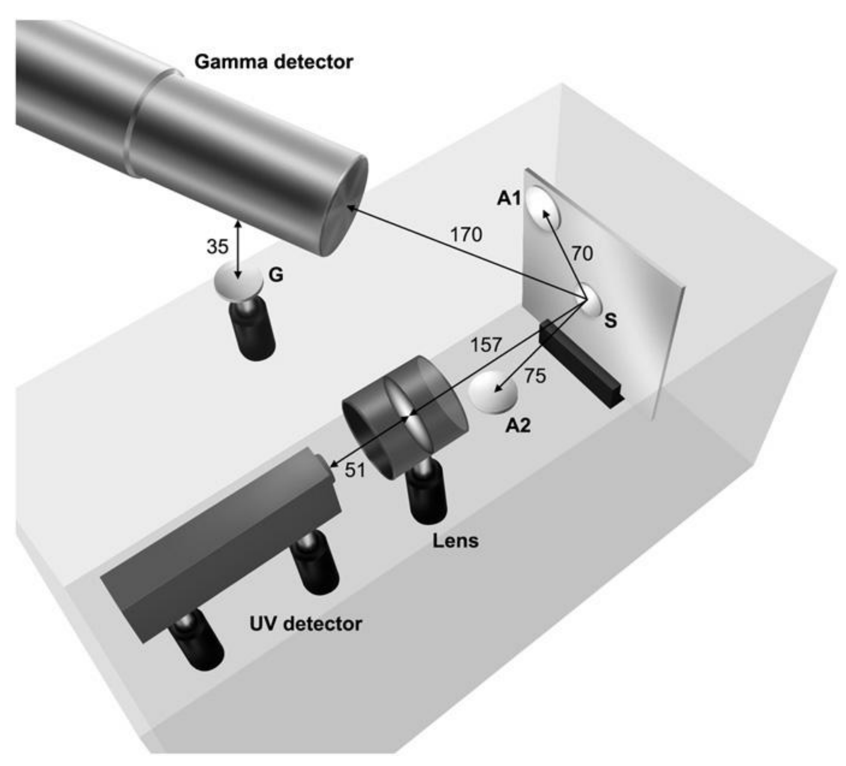


图 4 测量设置的几何示意图[21]

随着光学滤波和光电探测器技术的发展，也许可以优化掉这些辅助手段，但是现阶段这些辅助手段的确在提高信噪比和降低检测限等方面具有积极促进作用。

3 几款有潜力的α污染探测装置及其性能

在评价一款α污染远程探测器的性能之前，需要大致了解α污染探测的实际需求。Kume 等人在研究中提到，核电站产生的放射性废物若辐射水平大于 3.7 MBq/kg，则被确定为超铀酸废物（TRU），应与其他废物分离。因此，核电站在运行的α探测器的标准是：要求在高辐射环境中分辨 3.7 MBq/kg 或以下的α辐射水平[1]。但是，实际情况往往更复杂，在核设施现场会遇到的α污染辐射强度从 Bq ~ GBq 均都有可能[17]。本节将按时间顺序介绍几款性能较强、参数较为详尽的α污染远程探测器。

最早于 2005 年，Lamadie 等人就进行了基于荧光的α污染远程成像装置研制，该装置由收集辐射的物镜和检测辐射的 CCD 组成，能够检测低至 430 Bq/cm^2 水平的点源和扩展源（实验测试距离为 20 cm），且可以通过 10 mm 的有机玻璃等半透明材料进行检测（曝光时间为 600 s），但该探测器必须在黑暗条件下工作 [12]。

2009 和 2011 年，俄罗斯科学家 Ivanov 等人对比选出了一款名为 DayCor SuperB 的紫外照相机用于α污染成像，测试结果显示，在 3 m 距离下，其对于点源的最小可测活度为 105 Bq，曝光时间为 600 s，若延长 CCD 相机的曝光时间则可进一步提高相机的灵敏度，降低最小可测活度[13, 16]。Ivanov 等人的探测器可在日光条件下工作。

2011 年，Inrig 等人也报道了一款α污染相机，该相机除α污染成像系统外还包含激光对准、超声测距、常规照相和光学移动/旋转等部件。该相机能够在 1.5 m 的距离下，检测活度约 1 μCi（0.037 MBq）的α放射源（未给出该最小检测活度下的曝光时间），测试也是在黑暗条件下进行的[6]。成像效果如图 5 所示。





图 5 一个隐藏在书中的 21 kBq（0.58 Ci）的 ^{241}Am 的图像，照片（左）和空气荧光图像（右）[6]

Johan Sand 及其团队在 2010 年报道了他们名为 HAUVA 的远程α污染探测设备[20]，该设备利用连续的滤光片组成干涉滤波器和分束器，将入射光分成两部分以分别检测α诱导的辐射荧光信号和背景照明，通过光谱滤波的方式来将较弱的荧光信号从背景照明中区分出来。利用干涉滤波器和分束器的基础，他们还研究了另一种时间符合检测方案，即同样将入射光分为两部分，测量源自单一辐射衰变事件的光子的时间分布。由于单个α事件产生的荧光衰减时间为 5 ns，5 ns 尺度的背景巧合事件的概率是非常罕见的，因此该信息可应用于时间符合滤波，从更强的背景照明中区分α辐射引发的荧光信号。实验结果表明，HAUVA 可在亮黄色荧光或白色 LED 的照明条件下，在 1 s 内检测到 0.4 m 距离上活度为 100 kBq 的点源。Johan Sand 等人认为这种基于时间符合的滤波方式很有吸引力，随后在 2013 年 Ihantola 和 Johan Sand 的研究团队又建立了一种基于荧光的 UV-γ符合成像系统，同样应用了时间符合

原理（装置构成简介见 2.3 小节），该装置的γ探测器只有在检测到α诱导荧光光子时才会触发检测，以此确保探测器只聚焦于α辐射信号的记录，这种 UV-γ符合技术增强了高活性背景下的α探测[22]。

同年，Kume 等人研制的α相机在 1 m 的测试距离下，通过 30 s 的测试时间检测到 1.5 kBq 的α源，文献指出测试实验虽然是在黑暗中进行的，但是未来的商用机型也可配备滤波片，以允许现场操作[1]。

随后在 2015 年，Johan Sand 的团队又在现场测试了两款分别基于 ICCD 和 EMCCD 的紫外照相机对α污染的检测效果，在 0.5 m 的测试距离下，两者都能在 100 s 内检测到 MBq 水平的α辐射[11]，不过都是在黑暗条件下进行的测试。Johan Sand 等人在 2016 年研发了又一款可在强光照下工作的α污染探测器，他们分别选择了对远紫外光和近紫外光敏感的两种 PMT，分别匹配了特定滤波片堆叠构成的两种滤波器。其中，适用于照明环境的探测器可在明亮的荧光灯下，于 10 s 内检测到最小活度为 800 kBq 的α源。此外，如果使用氮气或氩气进行吹扫可进一步提升灵敏度[14]。

2017 年，法国 CEA（法国替代能源和原子能委员会）核测量实验室的 Mahé和 Venara 报道了他们一直使用且于 2016 年获得专利的单台双摄像头的探测器，该探测器可进行原位α/γ测量，但是该文章未给出具体的性能参数[18]。

Crompton 等人于 2017 和 2018 年报道了他们的基于 UVTron 探测器的α污染成像装置（可在照明条件下工作），并且探索了惰性气体条件对荧光信号的增强情况。如图 6 所示，该探测器置于气体流动箱之外，距离放射源约 20 mm。根据计算，在空气中 3600 s 内可能检测到的最低活度在 89 ~ 149 kBq 之间，而在氩气流动增强下，其检测限可降低至约 47 kBq[15]。

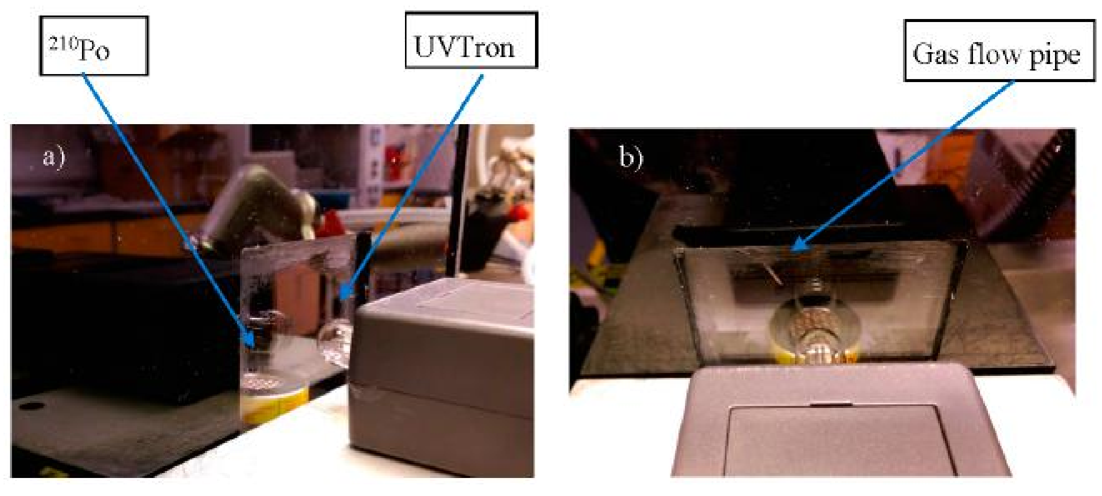


图 6 照片（a，b）显示气体流箱内的 210Po 源（带网格表面和黄色边缘的银色圆盘）和 UVTron（小玻璃灯泡，连接到装有探测器电子设备的灰色盒子）。在图（b）中，可以看到气体流经气源的管子位于气源的

左侧和上方[17]

近几年的远程α污染探测技术研究则更多地将目光放在太阳盲区。

2020 年 Gamage 和 Crompton 等人再次研究了基于 UVTron 传感器的远程α污染探测技术[23]，这次他们将 UVTron 传感器放置于钨准直器中，辐射源为一系列放射性同位素（^{210}Po，^{241}Am，^{137}Cs，^{90}Sr 和 ^{60}Co），以研究加装钨准直器后探测系统对γ和β辐射的屏蔽效果。研究结果表明，准直器在一定程度上保护了 UVTron 传感器免受γ和β辐射影响，然而准直器也大大降低了 UVC 信号。

2021 年，Krasniqi 和 Kerst 等人也研制了一款基于太阳盲区的可在强光下进行检测和成像的远程α污染探测器，该探测器具有 ICCD 相机和 PMT 组合在一起的两套光学探测系统，ICCD 相机用于捕捉可见光图像，而 PMT（铯-碲光电阴极）配合光学系统用于α诱导的辐射荧光成像，但更值得注意的是，Kerst 等人使用吹入 NO 气体的方式增强了 UVC 波段的辐射发光，配合优化的光学系统能实现对低活度α放射源的成像，成像效果如图 7 所示[24]。利用太阳盲区的辐射荧光成像的主要困难在于该波段下α诱导的辐射荧光强度非常低， 为此 Kerst 等人在 2018 年研究了氮对 UVC 波段α诱导辐射荧光的影响，研究结果表明通过向样品周围的 N_2 气氛中添加微量 NO，整体辐射荧光产率增加约 25 倍，且几乎所有的发射波段都落在 UVC 区[25]，他们将这一发现成功应用于 2021 年的研究中，说明太阳盲区的辐射荧光成像还有很大的探索空间。

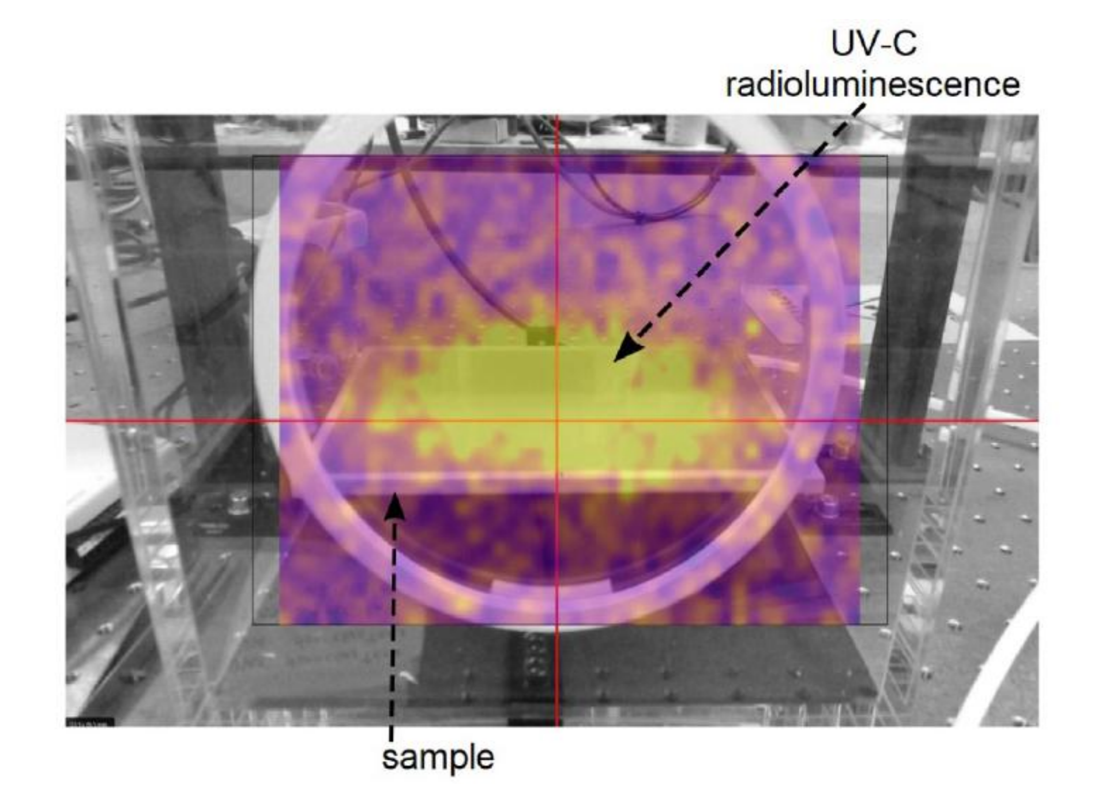


图 7 由铀同位素 U-234、U-235 和 U-238 组成的广域参考阿尔法发射源图像，其总活度为 330 Bq，活跃面积为 19.1×11.9 cm^2。N_2 气氛下 NO 的浓度约为 3 ppm。使用扫描 PMT 系统在约 0.4 m 距离处扫描场景，分辨率为 1 度，每点位积分 30 秒[24]

4 分析与总结

评价一款α污染探测器需要综合考虑探测距离、最小可测活度、检测时间以及照明等，表 1 对上述介绍的α污染远程探测器的性能参数情况进行了总结，其中的数据都来自文献。

表 1 几款α污染远程探测器的性能参数

年份与作者	最小可测活度	探测距离/m	检测时间/s	光电探测设备	工作环境
2005，Lamadie[12]	< 1 MBq/cm^2	1	600	熔融二氧化硅透镜，CCD	透过 10 mm 树脂玻璃，黑暗
2009，Ivanov[13]	10^5 Bq	3	600	——，CCD	日光
2011，Inrig[6]	37000 Bq	1.5	10	熔融二氧化硅透镜，PMTs	黑暗
2010，Sand[20]	100000 Bq	0.4	1	熔融二氧化硅透镜，PMTs	LED 照明
2013，Ihantola[22]	50 Bq	0.1	——	熔融二氧化硅透镜，PMTs	LED 照明
2013，Kume[1]	1500 Bq	1	30	熔融二氧化硅透镜，PMTs	黑暗
2015，Sand[11]	MBq 水平	0.5	100	——，ICCD/EMCCD	黑暗
2016，Sand[14]	800000 Bq	1	10	熔融二氧化硅透镜，PMTs	荧光灯照明
2017，Mahé[18]	——	——	——	熔融二氧化硅透镜，——	黑暗
2018，Crompton[15]	6.95 MBq	0.02	3600	熔融二氧化硅透镜，PMTs（UVTron）	实验室照明
2020，Gamage[23]	——	——	——	熔融二氧化硅透镜，PMTs（UVTron）	实验室照明
2021，Krasniqi[24]	330 Bq	——	——	熔融二氧化硅透镜，PMTs，ICCD	实验室照明

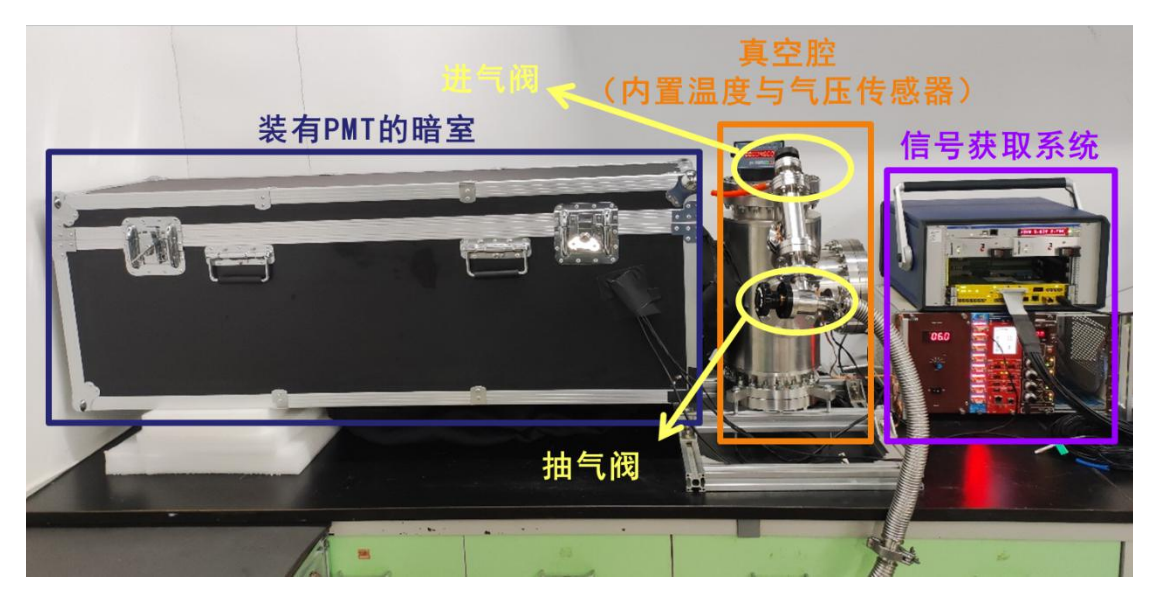


图 8 α粒子空气荧光测量收集系统

近年来，中核四 0 四与兰州大学组建联合团队针对α粒子空气荧光测量关键技术展开了系统性的研究。通过对已有文献中数据的比对，建立了适用于α诱发氮气荧光产额的模拟仿真模型程序，并对 CCD 相机进行了选型与研究。在成像模拟过程中引入暗电流噪声、读出噪声、散粒噪声以及额外噪声因子等，对样机成像过程中迫切关注的成像信噪比、成像分辨率以及强弱源的干扰等参数进行了充分的模拟研究[26]。根据相关理论和文献报道的热实验要求，依托中核集团“青年英才”科研项目，团队搭建了α粒子空气荧光测量收集系统（如图 8 所示），整个实验装置分为三部分，暗室、真空腔和电子学获取系统。通过在真空腔内模拟不同的气体环境条件，利用 PMT 及后端的信号获取系统对α诱发气体荧光的产额进行了实验测量。其中，将α源放置在腔室内，且腔室开透视窗与暗室连接，暗室内放置 PMT 对α源诱发的荧光进行测量（具体见“4.2”部分），并基于此系统及热实验的结果对空气荧光法远程测量α表面污染装置的设计做出了初步的设计构想。

4.1 基于 Geant4 的模拟仿真工作[26]

本工作在前期研究的基础上，发现了不同带电粒子激发氮气荧光光谱的相似性，即带电粒子激发氮气荧光的光谱谱线来自确定的几个分子能态跃迁。从高能宇宙射线电子诱发氮气荧光的研究工作中，我们借鉴了氮气荧光产生和退激发的物理机制后，结合 Geant4 工具开发了用于带电粒子诱发氮气荧光物理模型包，图 9 为α粒子与气体分子相互作用物理过程及计算模型空间示意图。该模型包包含五个环节：

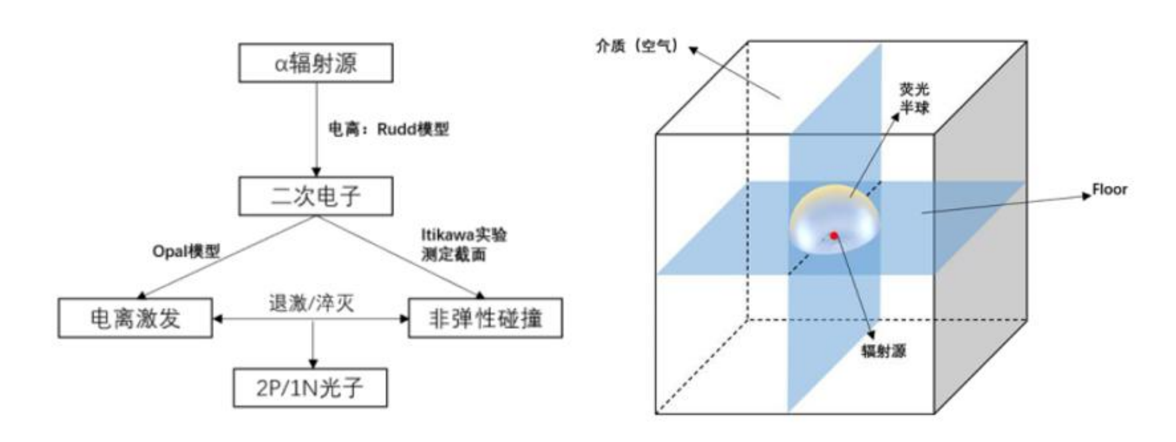


图 9 α粒子与气体分子相互作用物理过程及计算模型空间示意图[26]

（1）像α粒子、电子及伽马射线这样的入射粒子同介质中的气体分子相互作用。α粒子同介质的电离作用采用了有效电荷修正的 Rudd 模型[27-28]，核阻止作用采用了 Geant4 内置的物理模型。电子同介质包含弹性碰撞截面和非弹性碰撞截面的计算参考了拓展 Opal 模型[29]，这是一种对 Opal 模型能量范围延伸到 keV 量级的拓展版本。更低能量的电子同介质的作用，则依托 Itikawa 整合的实验截面数据[30-32]。关于电子散射角度，参考和改编自 Geant4 内置电离模型的角度计算方式，并在极低能电子附近采取各向同性的方式进行处理。伽马射线同介质的作用方式（光电效应、康普顿效应、电子对效应）直接使用了 Geant4 内置的作用过程模型。

（2）任何一种初级粒子都会通过与介质的相互作用，产生次级电子，并按照电子同介质的作用方式继续进行下去。产生的次级电子会以弹性碰撞、非弹性碰撞或电离激发的方式和介质中的氮气分子发生作用。其中，只有非弹性散射和电离激发的作用方式能够诱发产生氮气荧光。我们将电子模型中的总截面[30]同非弹性碰撞中的非电离激发截面和电离激发截面进行比对，得出电子将氮气分子激发到 *2P* 系统（非电离激发）还是 *1N*（电离激发）系统的概率。由于非电离激发的截面在超过电子能量 100 eV 时几乎可以忽略，因此，对于高能电子（>120 eV），氮气荧光主要来自于 *1N* 系统[30-32]。

（3）对激发到 *2P* 系统或者 *1N* 系统的氮气分子，按照 Franck-Condon 因子和爱因斯坦系数[33]，决定处于这些系统的氮气分子在对应态的概率以及向系统中其它态退激的概率。

（4）在（3）的基础上，对退激的过程，引入分子碰撞猝熄概率，且猝熄过程不发出光子。碰撞猝熄概率满足$\frac{p}{kT}\sum_x f_x \cdot Q_x^{v'}(T)$关系式[34]，其中，$P$ 表示气体介质的压强，k 为玻尔

兹曼常数，T 为开尔文温度，f_x 为气体 x 的体积占比，$Q_x^{v'}(T)=\sqrt{\frac{T}{293\text{K}}}\cdot Q_x^{v'}(293\ \text{K})$，表示气体 x 的猝熄因子。

（5）综合（3）和（4），决定最终处在 *2P* 系统或者 *1N* 系统的氮气分子退激方式和退激过程是否产生光子，以及产生光子时，对应光子的波长。将该工具包的模拟测试结果同已有实验数据[35]进行比对，彼此能很好地符合。在此基础上，我们开展了不同距离下、不同尺寸探测器所能接收荧光的收集效率变化情况模拟，为后续实验的开展提供了先验知识和重要参考。

除此之外，我们参考 Andor 公司的 Ixon Ultra 888 相机的参数，利用该模型包，对成像效果的信噪比、分辨率、遮掩效果等进行了模拟，结果如图 10 所示。表明：① 对同样水平的放射性α源，成像时间越久，信噪比逐渐升高；在相同的成像时间下，放射性水平较强的α源具有较高的成像信噪比。② 基于此台相机参数，α粒子诱发荧光的成像分辨率相当高，α源成像的边界与源的尺寸几乎不可分辨。③ 相邻的强源会对附近的弱源存在一定的“掩盖”效应，而且随着两者距离的增加此效应将减弱。此研究结果将后续工程技术中成像信噪比、成像时间、可测活度下限、CCD 相机选型、成像分辨等关键性指标设计提供重要参考。

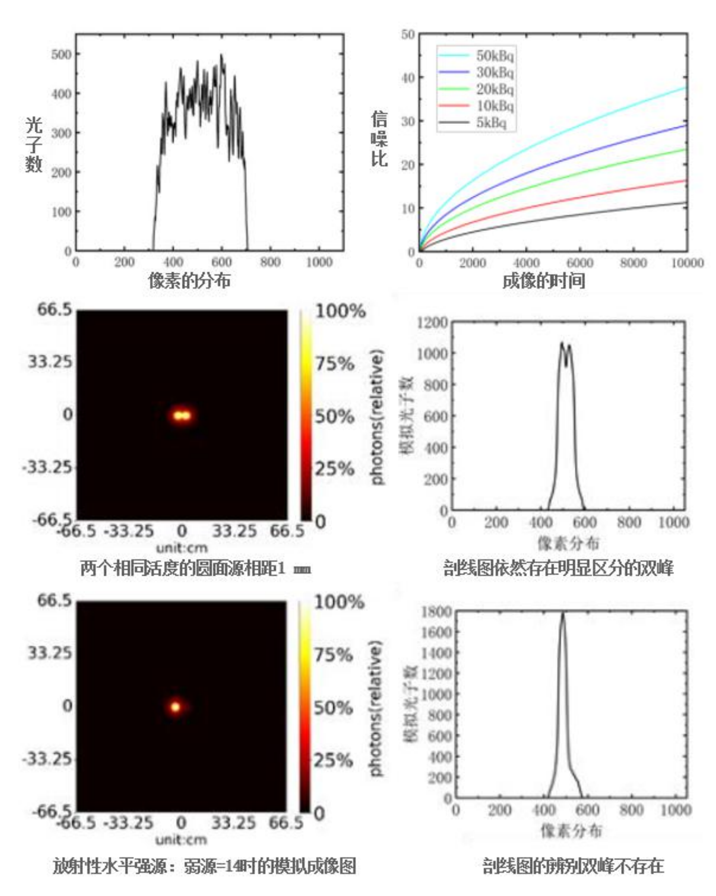


图 10 输入特定相机型号参数的成像信噪比、分辨率、遮掩效果示意图[26]

4.2 氮气荧光产额的精准实验测量

首先，气体分子间碰撞会有猝熄作用，导致α诱发氮气荧光的产额会随着环境条件发生变化，对后续远距离α放射性测量的定量分析产生干扰。因此，须要对不同条件（如不同的温度、湿度、压力和气体流速等）下α诱发氮气荧光的产额进行精确测量，以便后续应用中的数据修正。

图 11 为与图 8 对应的α诱发氮气荧光产额的实验测量示意图，真空腔作为一个相对密闭的环境，可以在小范围内模拟复杂的大气环境（如不同的温度、湿度、压力和气体流速）。温度控制通过“温度传感器+伴热带+电磁阀”的方式实现控制，当温度低于设置值，开始加热，反之，停止加热。湿度控制依托了饱和盐溶液在密闭空间中环境湿度动态平衡的特性，共选用了氯化锂、乙酸钾、氟化锂、溴化钠、碘化钾、溴化钾共 6 组不同的饱和盐溶液，实现了不同的湿度梯度的环境模拟。气压的控制通过真空腔和阀门的调节实现。空气流速影响的结果则在真空腔外进行了实验验证。最后，在腔室内置温度、湿度和气压传感器，实现内部环境数据参数的实时读出。真空腔观察窗一侧深入暗室之中，腔内α源激发产生的荧光可以透过观察窗被暗室内的 PMT 探测。基于前文蒙卡模拟结果的理论指导，为简化荧光光路和不必要的衰减修正、降低其它波长本底、确保尽可能多的荧光光子事件的收集，实验工作采用了“滤波片+大尺寸 PMT”的方案。另外，通过 PMT 和真空腔内 Si 探测器的符合，可以从时间上约束了背景与噪声，进一步提高信噪比，实现弱荧光环境下尽可能好的实验测量结果。在电子学系统中的探测器偏置电压、前放供电和高压供电插件分别为 Si 探测器、PMT 信号处理电路、PMT 完成供电。从 PMT 和 Si 探测器输出而来的信号，被输入多道分析器插件完成事件的采集（如图 11 所示）。

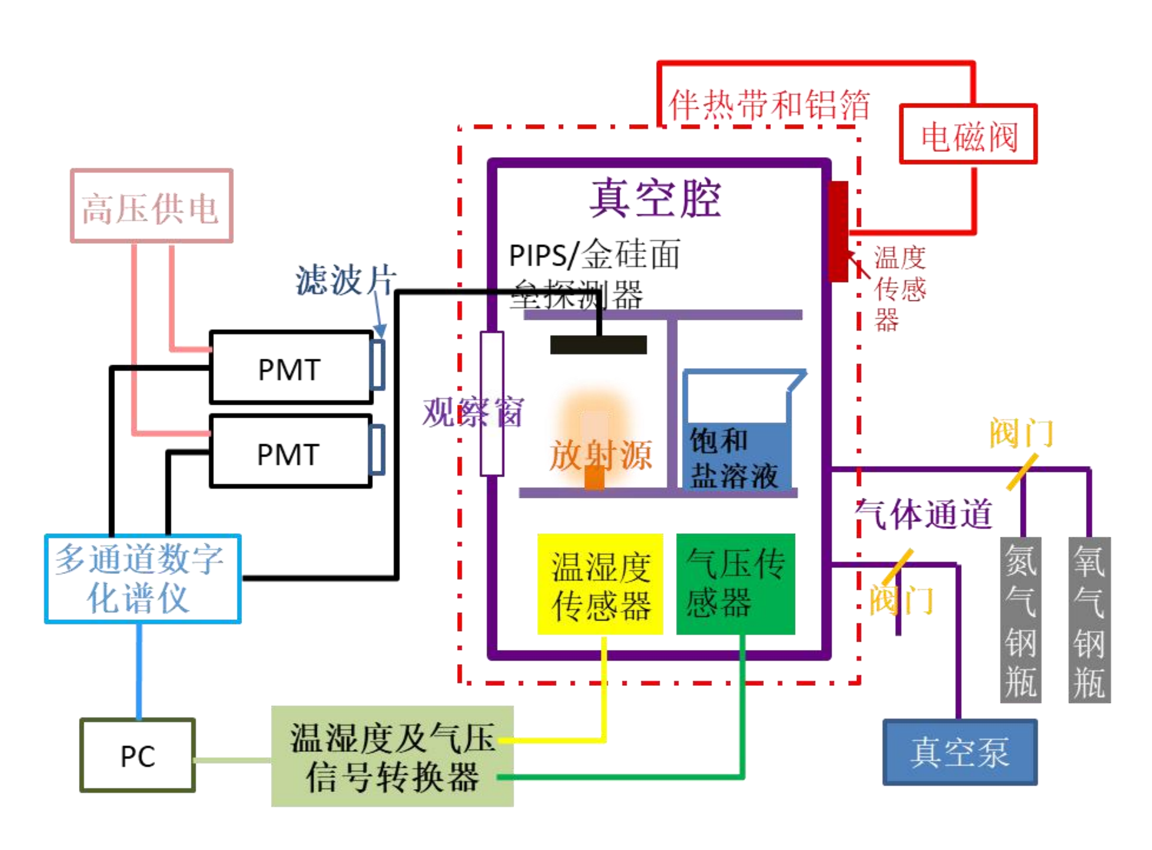


图 11 α诱发氮气荧光产额的实验测量示意图

根据α诱发氮气荧光产额的理论表达式[34]和实验定义式：

$$Y_{v',v''}(E,p,T) = \aleph_{v'}(E) \cdot \frac{A_{v',v''}}{\lambda_{rest} + \sum_{v''} A_{v',v''}} \cdot \frac{\lambda_{rest} + \sum_{v''} A_{v',v''}}{\lambda_{rest} + \sum_{v''} A_{v',v''} + \sum_{x} \lambda_{c,x}^{v'}}$$

$$= Y_{v',v''}(E) \cdot \frac{\lambda_{rest} + \sum_{v''} A_{v',v''}}{\lambda_{rest} + \sum_{v''} A_{v',v''} + \sum_{x} \lambda_{c,x}^{v'}}$$

$$= Y_{v',v''}(E) \cdot \frac{\lambda_{rest} + \sum_{v''} A_{v',v''}}{\lambda_{rest} + \sum_{v''} A_{v',v''} + C_{v'} \cdot \frac{p}{\sqrt{T}}} \tag{1}$$

$$Y(E_\alpha) = \frac{N_{photo}}{\left[\int_E N_\alpha(E)\, dE\right] \cdot \varepsilon_\Omega \cdot \left[\int_\lambda T_{window}(\lambda) \cdot T_{filter}(\lambda) \cdot QE(\lambda) \cdot CE \cdot \frac{d\widehat{N}}{d\lambda} d\lambda\right]} \tag{2}$$

可对透过滤波片的荧光峰数据建立多元的方程组，利用理论表达式中的 P 和 T 的约束条件，进行最小化偏差求解。得出结论（如图 12 所示）：

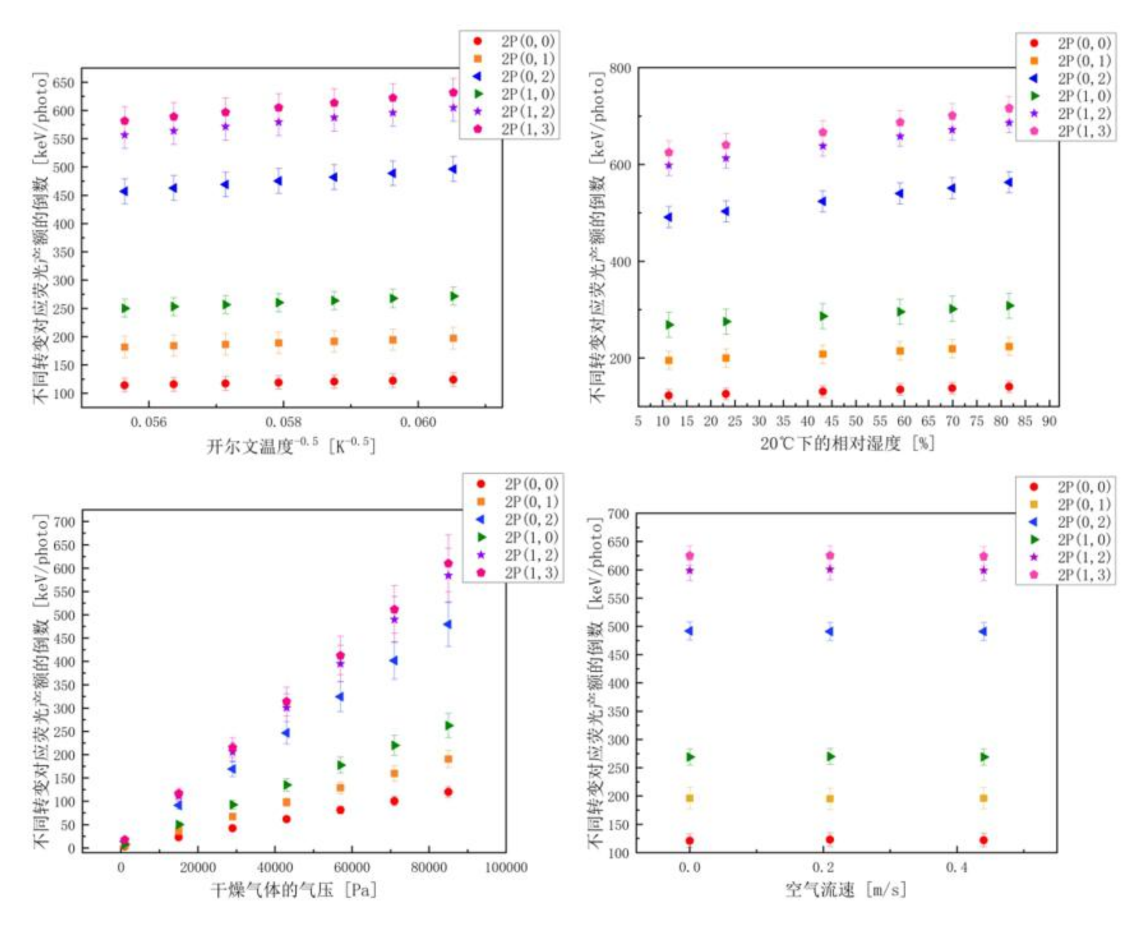


图 12 不同温度、压强、湿度、气体流速下的荧光产额影响

（1）不同温度下，大气成分（常压，干燥）中α粒子的诱发荧光产额变化不大。这是因为由于分子热运动的剧烈程度变化，分子碰撞猝熄概率和荧光产额也在变动，但由于宏观温度对分子热运动剧烈程度的影响较小，相比起气压的变化，其荧光产额变化较小；

（2）不同气压下，大气成分中（20°C，干燥）α粒子的诱发荧光产额随着气压的升高，荧光产额不断下降。这是因为随着气压的升高，分子间相互碰撞概率增加，α粒子诱发产生的激发态氮气分子会有更大的概率通过猝熄的过程退激而不产生荧光，因而荧光产额下降；

（3）不同湿度下，大气成分中（常压，20°C）α粒子的诱发荧光的实验中，对比不同气压干燥大气的“猝熄”效果，可以看出，水蒸气的“猝熄”效果比大气本身要强。在常规大气环境压强变化不明显的情况下，湿度可能是影响荧光产额最为重要的因素，尤其是在温度较高，绝对湿度上限更高的环境中；

（4）最后在真空腔外的常规大气环境中进行不同气体流速影响实验。发现，不同气体流速下，荧光产额没有明显的变化，验证了宏观尺度的气体流速不会影响微观层面的分子碰撞“猝熄”效果。

4.3 空气荧光法远程测量α表面污染装置的设计初步构想

如前第 2、3 部分的描述，当前国际上对α诱发氮气荧光成像方面的研究多是对已有非专用的商业化产品进行性能测试[11, 13, 16]，或仅处在实验室内部的原理性验证阶段[1, 6, 15, 17, 20, 22, 23, 24]，尚未研制成成熟的商业化产品。基于团队的研究结果，进一步深入开展氮气荧光成像方面的应用研究，我们针对该技术提出如下设计构想。

如图 13 所示，本研究团队设计了空气荧光法远程测量α表面污染装置，后端为紫外相机（CCD 相机），前端为聚焦镜头，内置双面凸透镜和滤波片等光学器件。

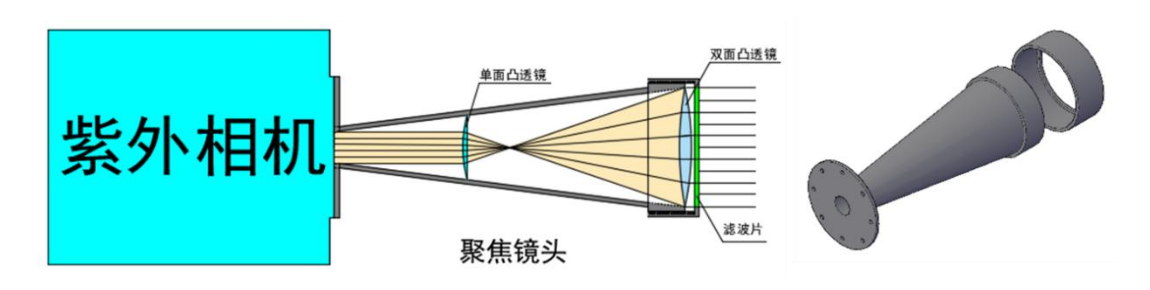


图 13 表面α污染监测装置示意图

通过α诱发荧光产额实验分析，α粒子在空气中产生的荧光产额除了与α粒子本身的能量有关外，还与空气的气压、温度、湿度等有着密切的联系，其中气压、温度与空气分子的密度和能量状态相关联，空气湿度与“分子猝熄”效果相关联。经实验分析得，α粒子诱发荧光产额的修正函数如下公式（3）所示：

$$\sigma(E,p,T)=\frac{Y_{v',v''\,本征}(E)}{Y_{v',v''}(E,p,T)}=\frac{\sum_{v'}\sum_{v''}Y_{v',v''\,本征}(E)}{\sum_{v'}\sum_{v''}Y_{v',v''\,本征}(E)\cdot\frac{\lambda_{本征}}{\lambda_{本征}+\frac{p}{kT}\sum_x f_x\cdot Q_x^{v'}(T)}\cdot\frac{\Omega}{\theta}}=\left(1+\frac{\frac{p}{kT}\sum_x f_x\cdot Q_x^{v'}(T)}{\lambda_{本征}}\right)\cdot\left(\frac{\Omega}{\theta}\right)^{-1} \tag{3}$$

其中，$Q_x^{v'}(T)=\sqrt{\frac{T}{293K}}\cdot Q_x^{v'}(293K)$；$Y_{v',v''\,本征}(E)$为α粒子在空气中产生的荧光本征产额；$Y_{v',v''}(E,p,T)$是探测到的荧光产额；$\lambda_{本征}$为本征“猝熄”概率；$\Omega$为聚焦镜头窗口处的立体角；$\theta$是监测材料表面张角。在开发的装置中需要根据此关系内置修正函数软件，使得在各种环境下的测量更加准确。

5 展望

本文首先综述了国际上基于氮气荧光的α污染远程探测技术的发展状况，并在最后简述了当前团队最新的研究工作。通过蒙卡模拟和实验研究发现：尽管α诱发氮气荧光的空间分布十分密集，更容易实现α放射源的定位与分析，但相应的产额却十分微弱，呈现出各向同性的方式向空间中发射，而且容易受到空间环境中湿度、压强等因素的影响。如果要在合适

的距离下实现每 MeV 仅十几个光子的辐射事件探测，对实验设备噪声的极高要求以及环境干扰的严格控制是毋庸置疑的。可以看出，目前，α污染远程探测器未来的研究侧重方向仍然是降低背景光干扰，提高荧光收集效率，以期在自然照明条件下实现对α污染的有效探测。

结合实际应用环境，空气荧光法远程测量α表面污染装置的研制会变得更加复杂。如，在工程化应用方面，实现在有光环境下对α诱发荧光的精准探测同时不受环境本底的干扰；在荧光探测方面，充分结合时间信息进行符合或者结合合适的数据算法，对采集到的数据进行自动化处理；在样机的研发方面，除了光电转换器件的适当选型，还应对视场角、像素、探测距离等因素进行充分研究，以确定较好的成像效果。未来的工作需要在几个方面进行进一步研究，包括但不限于以下方面：

(1) 研究提高荧光产生效率的方法，包括利用充斥惰性气体等；

(2) 进一步优化滤波方法、电子学插件等，降低噪声等对特征信号的影响；

(3) 研究基于空气荧光法进行核素识别；

(4) 研究复杂环境中，多种污染源耦合场的成像方法；

(5) 研究基于空气荧光法远程测量α表面污染的标准等；

(6) 研究基于空气荧光法表征环境样品的可行性。

参考文献（References）

[1] NAOTO K, KEI T, KUNIHIKO N, et al. 2013 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (2013 NSS/MIC), 2013, 1-6. **doi: 10.1109/NSSMIC.2013.6829621**

[2] IIDA T, YAMAMOTO S, IKEBE Y, et al. Nuclear Instruments and Methods, 1983, 212: 413-418. **doi: 10.1016/0167-5087(83)90723-8**

[3] YAMAMOTO S, WATABE T, KANEDA-NAKASHIMA K, et al. Journal of instrumentation. 2021, 16(6): 6009. **doi: 10.1088/1748-0221/16/06/P06009**

[4] CROMPTON A, GAMAGE K, JENKINS A, et al. Sensors, 2018, 18(4): 1015. **doi: 10.3390/s18041015**

[5] WU Z, CHENG J, XU M, et al. Sensors, 2022, 22(1): 202. **doi: 10.3390/s22010202**

[6] INRIG E, KOSLOWSKY V, ANDREWS B, et al. AIP conference proceedings, 2011, 1412(1). **doi: 10.1063/1.3665340**

[7] DAVIDSON G, O'NEIL R. The Journal of Chemical Physics, 1964, 41(12): 3946-3955. **doi: 10.1063/1.1725841**

[8] HUGGINS W, HUGGINS L. Proc R Soc. Lond. 1903, 72(477-486): 196-199.

[9] FEENER J S, CHARLTON W S. 2013 3rd International Conference on Advancements in Nuclear Instrumentation, Measurement Methods and their Applications (ANIMMA), 2013, 1-8. **doi: 10.1109/ANIMMA.2013.6728086**

[10] BASCHENKO S M. J Radiol Prot. 2004, 24(1): 75-82. **doi: 10.1088/0952-4746/24/1/006**

[11] SAND J, IHANTOLA S, PERÄJÄRVI K, et al. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2015, 782: 13-19. **doi:**

10.1016/j.nima.2015.01.087
[12] LAMADIE F, DELMAS F, MAHE C, et al. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2005, 52(6): 3035-3039. **doi: 10.1109/TNS.2005.862911**
[13] IVANOV O, DANILOVICH A, STEPANOV V, et al. ASME 2009 12th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management, 2009, 2: 321-325. **doi: 10.1115/ICEM2009-16145**
[14] SAND J, NICHOLL A, HRNECEK E, et al. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2016, 63(3): 1777-1783. **doi: 10.1109/TNS.2016.2562359**
[15] CROMPTON A, GAMAGE K, BELL S, et al. Sensors, 2018, 18(6): 1842. **doi: 10.3390/s18061842**
[16] IVANOV O P, STEPANOV V E, SMIRNOV S V, et al. IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record, 2011, 2192-2194. **doi: 10.1109/NSSMIC.2011.6154448**
[17] CROMPTON A, GAMAGE K, BELL S, et al. Sensors, 2017, 17(12): 2756. **doi: 10.3390/s17122756**
[18] MAHE C, CUOZZO M, LAFONT F, et al. 2017 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (NSS/MIC), 2017, 1-5. **doi: 10.1109/NSSMIC.2017.8532595**
[19] SHAW G A, SIEGEL A M, MODEL J, et al. Proc. SPIE 7320, Advanced Photon Counting Techniques III, 73200J, 2009. **doi: 10.1117/12.820825**
[20] SAND J H V T, TOIVONEN H. IAEA: N. p., 2010. Web. **Available on-line: http://www.iaea.org/OurWork/SV/Safeguards/Symposium/2010/Documents/PapersRepository/023.pdf**
[21] IHANTOLA S, SAND J, PERÄJÄRVI K, et al. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2012, 690: 79-84. **doi: 10.1016/j.nima.2012.06.044**
[22] IHANTOLA S, SAND J, PERAJARVI K, et al. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2013, 60(1): 305-309. **doi: 10.1109/TNS.2013.2238249**
[23] GAMAGE K A A, CROMPTON A J, JENKINS A, et al. Radiation Physics and Chemistry, 2020, 177: 109197. **doi: 10.1016/j.radphyschem.2020.109197**
[24] KRASNIQI F S, KERST T, LEINO M, et al. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2021, 987: 164821. **doi: 10.1016/j.nima.2020.164821**
[25] KERST T, TOIVONEN J. Optics Express, 2018, 26(26): 33764. **doi: 10.1364/OE.26.033764**
[26] WANG Q X, SI S Y, LI Z H et al. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2022. 12. 16. 0002 (in Chinese)
（王权晓，司书尧，李枝恒，等。核电子学与探测技术，2022.12.16.0002）
[27] BOOTH W, GRANT I S. Nuclear Physics. 1965, 63(3): 481-495. **doi: 10.1016/0029-5582(65)90478-5**
[28] RUDD M E. Part D. Nuclear Tracks and Radiation Measurements. 1989, 16(2): 213-218. **doi: 10.1016/1359-0189(89)90052-6**
[29] ARQUEROS F, BLANCO F, ROSADO J. New Journal of Physics. 2009, 11(6): 65011. **doi: 10.1088/1367-2630/11/6/065011**
[30] ITIKAWA Y. Journal of Physical and Chemical Reference Data. 2005, 35(1): 31-53. **doi: 10.1063/1.1937426**
[31] ITIKAWA Y. Journal of Physical and Chemical Reference Data. 2008, 38(1): 1-20. **doi: 10.1063/1.3025886**
[32] ITIKAWA Y, MASON N. Journal of Physical and Chemical Reference Data. 2005, 34(1): 1-22. **doi: 10.1063/1.1799251**
[33] GILMORE F R, LAHER R R, ESPY P J. Journal of Physical and Chemical Reference Data. 1992, 21(5): 1005-1107. **doi: 10.1063/1.555910**
[34] WALDENMAIER T, BLÜMER J, KLAGES H. Astroparticle Physics. 2008, 29(3): 205-222. **doi:**

10.1016/j.astropartphys.2008.01.004
[35] SAND J, IHANTOLA S, PERÄJÄRVI K, et al. New Journal of Physics, 2014, 16(5): 053022. **doi: 10.1088/1367-2630/16/5/053022**

Research progress and prospect of device in the remote measurement of α surface contamination by air fluorescence method

SI Shuyao[1, 2, 4], CHANG Qilin [1, 2#], HAN Xueyan[3], CHEN Junliang[1, 2], YANG Huimin[1], FANG Kaihong [3], ZHONG Yiqiang[1, 2], LIU Caibing [1, 2, 4], LI Lianshun [1, 2, 4], YANG Tinggui[1, 2], WANG Jian[1, 2#]

1. The 404 Company Limited., CNNC, Lanzhou, Gansu Prov. 735100, China;

2. Key Laboratory of Nuclear Fuel Cycle Technology, Gansu Prov. 735100, China;

3. School of Nuclear Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China

4. Chengdu Nuclear Engineering Design & Research Institute Co., Ltd., 404, CNNC, Sichuan Prov. 610000, China

Abstract: In the field of nuclear industry, α surface contamination exists in many places. In the case of emergency conditions, it is generally necessary to carry out remote detection of abnormal areas firstly, and then make a plan scientifically based on the measurement results. In view of this situation, technology for remote detection of α particles based on air fluorescence has been proposed internationally. The principle is that nitrogen in the air will emit a specific wavelength of ultraviolet fluorescence through the excitation and deexcitation process under the action of α radiation, allowing the ultraviolet camera to detect α radiation remotely. In China, there are few reports on remote detection of α surface contamination, the research has been pioneered by the 404 Company Limited and Lanzhou University. In this paper, the international development of remote α contamination detecting technology based on nitrogen fluorescence is reviewed, and the latest research work of our team is briefly described, in order to provide reference for promoting research on remote detection of α contamination.

Key words: Air fluorescence; α surface contamination; Remote detection; Nuclear detection

---

Received date: **yyyy-mm-dd**; Revised date: **yyyy-mm-dd**

Foundation item: CNNC Research Fund for 'Young talented'

1) E-mail: ssy@whu.edu.con

Corresponding author: WANG Jian, E-mail: wjzh404@163.com; CHANG Qilin, E-mail: xuanyuanl1317@163.com